

**Thesis Title** Biodegradable Polyesters Used in Medical Applications: A Study of Polyhydroxybutyrate and Its Copolymers

**Author** Ms. Warunee Manowanna

**M.S.** Chemistry

**Examining Committee:**

Lecturer Dr. Robert Molloy **Chairman**

Lecturer Dr. Nipapan Molloy **Member**

Lecturer Dr. Kessara Suvannachut **Member**

**Abstract**

The effect on thermal stability of introducing hydroxyvalerate (HV) units into the polyhydroxybutyrate (PHB) structure, as in poly(hydroxybutyrate-co-hydroxyvalerate) (P(HB-co-HV)) copolymers, was studied. The HV content in the polymers ranged from 0 % (for PHB) to 20 % by weight. In each case, changes in molecular weight with time at 170°C indicated that the main mode of polymer breakdown during the early part of the degradation was random chain scission. Subsequently, chain-end scission assumed greater importance. This chain scission resulted from main-chain  $\beta$ -H elimination leading to the formation

of trans-crotonic acid as the major product from PHB, accompanied by proportionate amounts of trans-2-pentenoic acid from P(HB-co-HV). Dynamic thermogravimetry showed closest fit to first-order kinetics with activation energies,  $E$ , generally higher than expected in the range 266–479 kJ mol<sup>-1</sup>. The value of  $E$  appeared to increase with HV content and decrease with molecular weight. Despite this, the combined experimental results, together with previous model compound studies and theoretical considerations suggested that polymer thermal stability decreased with increasing % HV. However, the effect was not great within the 0–20 % HV range studied. Finally, lowering of the melting range with increasing HV has the potentially important advantage of improving processibility, a major problem arising from the melt instability of PHB.

ชื่อเรื่อง วิทยานิพนธ์      พอลิเอสเตอร์ที่สามารถสลายตัวทางชีวภาพซึ่งใช้ประยุกต์ทาง  
การแพทย์: การศึกษาพอลิไฮดรอกซีบีวทีเรตและโคพอลิเมอร์

ชื่อผู้เขียน      น.ส. วารุณี มโนวรรณ

วิทยาศาสตร์มหาบัณฑิต      สาขาวิชาเคมี

คณะกรรมการตรวจสอบวิทยานิพนธ์:

อ.ดร. โรเบิร์ต	มอลลอย	ประธานกรรมการ
อ.ดร. นิภาพันท์	มอลลอย	กรรมการ
อ.ดร. เกศรา	สุวรรณฉัตร	กรรมการ

บทคัดย่อ

ได้ศึกษาผลของการนำหน่วยไฮดรอกซีวาลีเรต (HV) เข้าไปในโครงสร้าง  
ของพอลิไฮดรอกซีบีวทีเรต (PHB) ต่อการเสถียรโดยความร้อน ตั้งในพอลิไฮดรอกซี  
บีวทีเรต-โค-ไฮดรอกซีวาลีเรตโคพอลิเมอร์ (P(HB-co-HV)) ส่วนประกอบของ HV  
ในพอลิเมอร์อยู่ในช่วงร้อยละ 0 (สำหรับ PHB) ถึงร้อยละ 20 โดยน้ำหนัก ในแต่ละกรณี  
ของการเปลี่ยนแปลงน้ำหนักโมเลกุลตามเวลาที่อุณหภูมิ 170 °C แสดงให้เห็นว่าขั้นตอนแรก  
ของการสลายตัวของพอลิเมอร์จะเป็นการลดรูปแบบตัดสายโซ่อย่างสุ่มเป็นสำคัญ ต่อจากนั้น  
การสลายตัวแบบตัดสายโซ่ของปลายสายโมเลกุลจะสำคัญมากกว่า ในการตัดสายโซ่ซึ่งเป็น  
ผลจากการกำจัดเบตา-ไฮโดรเจนของสายโซ่โมเลกุลให้ผลิตภัณฑ์หลักเป็นทรานซ์-โคโดนิน  
แอสิด จาก PHB และให้เป็นทรานซ์-2-เพนทีโนอิค แอซิด รวมอยู่ด้วยตามสัดส่วนจาก  
P(HB-co-HV) ไตนามิกส์เทอร์โมกราวิเมทรีแสดงถึงความใกล้เคียงกับจลนพลศาสตร์

อันดับหนึ่งมากที่สุด โดยมีค่าพลังงานกระตุ้นสูงกว่าที่คาดไว้คือ อยู่ในช่วง 266-479 กิโลจูล/โมล ค่าของพลังงานกระตุ้นจะเพิ่มขึ้นตามสัดส่วนประกอบของ HV และลดลงตามน้ำหนักโมเลกุล ถึงแม้จะเป็นอย่างนี้ผลรวมจากการทดลองและจากการศึกษาแบบจำลองสารประกอบ และจากพิจารณาตามทฤษฎีเข้าด้วยกันแสดงว่าการเสถียรต่อความร้อนของพอลิเมอร์จะลดลงตามการเพิ่มขึ้นของร้อยละ HV อย่างไรก็ตามจะมีผลไม่มากนักในช่วงร้อยละ 0-20 HV ซึ่งได้จากการศึกษาประการสุดท้ายการลดลงของช่วงจุดหลอมเหลวตามการเพิ่มขึ้นของส่วนประกอบของ HV มีประโยชน์สำคัญและมีศักยภาพในการปรับปรุงขบวนการผลิตซึ่งปัญหาหลักเกิดขึ้นจากการไม่เสถียรของ PHB ที่หลอม.



ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่  
Copyright© by Chiang Mai University  
All rights reserved